

## 窒素と酸素からなるクラスター( $\text{N}_2\text{O}_3$ ) $_n$ ( $n=1\sim 4$ )の安定構造の探索

○浜口孔希<sup>1)</sup>、山門英雄<sup>2)</sup>、時子山宏明<sup>3)</sup>、大野公一<sup>3),4)</sup>

1)和歌山大院システム工、2)和歌山大システム工、3)量子化学探索研究所、4)東北大院理

《序》窒素と酸素からなるクラスターは窒素分子と酸素分子に解離する時に、大きなエネルギーを放出するため、高エネルギー貯蔵物質への応用が期待されている[1,2]。本研究では( $\text{N}_2\text{O}_3$ ) $_n$ ( $n=1\sim 4$ )について安定構造を多く見つけることを目的とし、GRRM プログラムを用いた結果の報告を行う。

《計算方法》構造探索では、超球面探索法(Scaled Hypersphere Search method : SHS 法)[3]を用いた。SHS 法とは振動固有値の平方根でスケールされた基準座標にて、実ポテンシャルと調和ポテンシャルとの差：非調和下方歪み(Anharmonic Downward Distortion : ADD)が、より大きくなる経路を平衡構造(EQ)から辿り、遷移構造(TS)を見つけ、その先にある EQ を芋づる式に探索することが出来る方法である。エネルギー計算には( $\text{N}_2\text{O}_3$ ) $_1$ は Gaussian09 を使い、計算レベルは MP2/6-31G とした。また、( $\text{N}_2\text{O}_3$ ) $_n$ ( $n=2\sim 4$ )は SCC-DFTB 法[4]を用いた。また、( $\text{N}_2\text{O}_3$ ) $_n$ ( $n=2,3$ )について初期構造の周囲での FirstOnly 計算も行った(RHF/3-21G)。

《結果》GRRM/Gaussian09 および GRRM/SCC-DFTB プログラム[5]による探索の結果、( $\text{N}_2\text{O}_3$ ) $_n$ ( $n=1\sim 4$ )の準安定構造の 1 つとして過去の報告[1,2]と同様にケージ型構造が得られた。

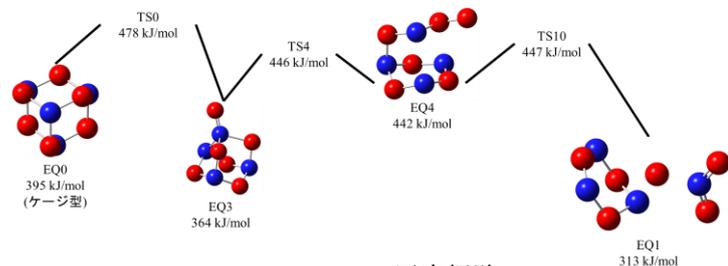


Fig.1 ( $\text{N}_2\text{O}_3$ ) $_2$  の反応経路

この他にも多くの安定構造が得られ、

その中には、 $\text{N}_2\text{O}_2$  や  $\text{NO}_2$ ,  $\text{NO}$  などからなる構造も見られた。また、( $\text{N}_2\text{O}_3$ ) $_2$  について、反応経路を Fig.1 に示す。障壁の高さは約 70 kJ/mol ほどあることから、高エネルギー貯蔵物質への応用が期待できると考えられる。今後、ラジカル対を考慮し閉殻系の計算も行う。

### 《参考文献》

- [1] S. Evangelisti, J. Phys. Chem. A, 102 (25), 4925 (1998).
- [2] B. Tan, M. Huang, X. Long, J. Li, X. Yuan, R. Xu, Polyhedron, 79, 124 (2014).
- [3] K. Ohno, S. Maeda, Chem. Phys. Lett., 384, 277 (2004); S. Maeda, K. Ohno, J. Phys. Chem. A, 109, 5742 (2005); K. Ohno, S. Maeda, J. Phys. Chem. A, 110, 8933 (2006).
- [4] M. Elstner, D. Porezag, G. Jungnickel, J. Elsner, M. Haugk, Th. Frauenheim, S. Suhai and G. Seifert, Phys. Rev. B, 58, 7260 (1998); B. Aradi, B. Hourahine and Th. Frauenheim, J. Phys. Chem. A, 111(26), 5678 (2007).
- [5] H. Tokoyama, H. Yamakado, S. Maeda, K. Ohno, Chem. Lett. 43, 702 (2014).